

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-279201

(43)公開日 平成11年(1999)10月12日

(51)Int.Cl.<sup>9</sup>

識別記号

F I

C 0 8 B 3/06

C 0 8 B 3/06

A 2 4 D 3/10

A 2 4 D 3/10

審査請求 有 請求項の数13 O L (全 11 頁)

(21)出願番号 特願平10-86769

(22)出願日 平成10年(1998) 3 月31日

(71)出願人 000004569

日本たばこ産業株式会社

東京都港区虎ノ門二丁目2番1号

(72)発明者 山下 陽一郎

東京都墨田区横川一丁目17番7号 日本た  
ばこ産業株式会社内

(74)代理人 弁理士 鈴江 武彦 (外5名)

(54)【発明の名称】 生分解性セルロースアセテート成形品およびたばこ用フィルタープラグ

(57)【要約】

【課題】経時的なセルロースアセテートのD S値の変化と酢酸臭の発生を抑制し得るセルロースアセテートの生分解促進手段を提供する。

【解決手段】リンの酸素酸、硫黄の酸素酸および窒素の酸素酸、それら酸素酸の部分エステルもしくは水素塩、炭酸およびその水素塩、スルホン酸、並びにカルボン酸からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる分解促進剤と、窒素含有化合物、ヒドロキシ化合物、含酸素複素環式化合物、および含硫黄複素環式化合物からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる反応制御剤との複合体をセルロースアセテートに含有させる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 リンの酸素酸、硫黄の酸素酸および窒素の酸素酸、それら酸素酸の部分エステルもしくは水素塩、炭酸およびその水素塩、スルホン酸、並びにカルボン酸からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる分解促進剤と、窒素含有化合物、ヒドロキシ化合物、含酸素複素環式化合物、および含硫黄複素環式化合物からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる反応制御剤との複合体をセルロースアセテートに含有させた生分解性セルロースアセテートから成

形された成形品。

【請求項2】 該セルロースアセテートが、2.0ないし2.6のDS値を有することを特徴とする請求項1記載の成形品。

【請求項3】 該分解促進剤が、リン酸、ポリリン酸、フィチン酸、リン酸スターチ、リン酸セルロース、リン酸水素カルシウム、レシチンおよびリン酸ジ2-エチルヘキシルエステル；並びにメタクリル酸2-ヒドロキシエチルリン酸エステル、メタクリル酸2-ヒドロキシエチルフェニルリン酸エステルおよびメタクリル酸2-ヒドロキシエチルアルキルリン酸エステル並びにこれらのポリマーもしくはコポリマーからなる群の中から選ばれた少なくとも1種からなることを特徴とする請求項1または2記載の成形品。

【請求項4】 該反応制御剤が、ピロリドン構造を有する化合物、オキサゾリドン構造を有する化合物、イミド構造を有する化合物、ピリジン構造を有する化合物、アミノキシド構造を有する化合物、ピラジン構造を有する化合物、ポリビニルアルコールもしくはその誘導体、アルキルセルロース、ヒドロキシアルキルセルロース、ショ糖脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸アミド、および脂肪酸アルカノールアミドからなる群の中から選ばれた少なくとも1種からなることを特徴とする請求項1ないし3のいずれか1項記載の成形品。

【請求項5】 該分解促進剤が、セルロースアセテートに対し、0.01～40重量%の割合で含有されていることを特徴とする請求項1ないし4のいずれか1項記載の成形品。

【請求項6】 該反応制御剤が、セルロースアセテートに対し0.01～50重量%の割合で含有されていることを特徴とする請求項1ないし5のいずれか1項記載の成形品。

【請求項7】 繊維の形態にある請求項1ないし6のいずれか1項記載の成形品。

【請求項8】 セルロースアセテート繊維を含むたばこ

用フィルタープラグであって、各セルロースアセテート繊維は少なくともその表面領域にリンの酸素酸、硫黄の酸素酸および窒素の酸素酸、それら酸素酸の部分エステルもしくは水素塩、炭酸およびその水素塩、スルホン酸、並びにカルボン酸からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる分解促進剤と、窒素含有化合物、ヒドロキシ化合物、含酸素複素環式化合物、および含硫黄複素環式化合物からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる反応制御剤との複合体を含有することを特徴とするたばこ用フィルタープラグ。

【請求項9】 該セルロースアセテートが、2.0ないし2.6のDS値を有することを特徴とする請求項8記載のたばこ用フィルタープラグ。

【請求項10】 該分解促進剤が、リン酸、ポリリン酸、フィチン酸、リン酸スターチ、リン酸セルロース、リン酸水素カルシウム、レシチンおよびリン酸ジ2-エチルヘキシルエステル；並びにメタクリル酸2-ヒドロキシエチルリン酸エステル、メタクリル酸2-ヒドロキシエチルフェニルリン酸エステルおよびメタクリル酸2-ヒドロキシエチルアルキルリン酸エステル並びにこれらのポリマーもしくはコポリマーからなる群の中から選ばれた少なくとも1種からなることを特徴とする請求項8または9記載のたばこ用フィルタープラグ。

【請求項11】 該反応制御剤が、ピロリドン構造を有する化合物、オキサゾリドン構造を有する化合物、イミド構造を有する化合物、ピリジン構造を有する化合物、アミノキシド構造を有する化合物、ピラジン構造を有する化合物、ポリビニルアルコールもしくはその誘導体、アルキルセルロース、ヒドロキシアルキルセルロース、ショ糖脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸アミド、および脂肪酸アルカノールアミドからなる群の中から選ばれた少なくとも1種からなることを特徴とする請求項8ないし10のいずれか1項記載のたばこ用フィルタープラグ。

【請求項12】 該分解促進剤が、セルロースアセテートに対し、0.01ないし40重量%の割合で含有されていることを特徴とする請求項8ないし11のいずれか1項記載のたばこ用フィルタープラグ。

【請求項13】 該反応制御剤が、セルロースアセテートに対し0.01～50重量%の割合で含有されていることを特徴とする請求項8ないし12のいずれか1項記載のたばこ用フィルタープラグ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、生分解性セルロースアセテート成形品およびその製造方法、並びに喫煙物

品用フィルタープラグに関する。

【0002】

【従来の技術】セルロースアセテートは、各種成形品として、例えば、たばこ用フィルター素材および衣料用等の織布のための繊維として、フィルムとして、その他射出成形や押出し成形等による成形品として、広範に利用されている。

【0003】セルロースアセテートは、セルロースを酢酸エステル化したものであり、本質的には生分解可能な物質である。しかし、実際には、セルロースアセテートは、必ずしも生分解性が良好であるとはいえない。

【0004】すなわち、セルロースアセテートからなる成形品は、例えば土壤中に埋設されたとしても、1～2年ではまだその原形を留めており、これらの成形品が完全に生分解されるまでには非常に長い時間を要する。これらの成形品は、廃棄物として埋立てに供されることもあり、また、場合によっては廃棄物として回収されずに自然環境中に放置されることもある。従って、セルロースアセテートの生分解性を促進させることが急務となっている。

【0005】このような状況の下、セルロースアセテートの生分解性に関し種々の研究が行われている。それらの研究報告によると、セルロースアセテートの生分解速度は、セルロースアセテートのDS (Degree of Substitution: グルコース単位骨格当りのアセチル基の数) に依存する。すなわち、セルロースアセテートのDSが減少すると、セルロースアセテートの生分解速度は速くなる。また、その生分解機構は、以下のように考えられている。

【0006】まず初めに、セルロースアセテートのアセチル基が微生物から放出される菌体外酵素によって切断され、その結果セルロースアセテートのDSが減少する。その後、このDSが減少したセルロースアセテートは、環境中に広く存在するセルラーゼ等によって容易に酵素分解を受け、最終的には微生物代謝を受けて二酸化炭素と水に資化される。ここで、生分解速度の律速段階は、初めのアセチル基の切断にあると考えられている。

【0007】これらの知見を基に、セルロースアセテートの生分解速度を促進させる手法がいくつか提案されている。例えば、特開平6-199901号公報には、酢酸より酸解離定数の大きい酸化合物をセルロースアセテートに添加することによりセルロースアセテートの生分解性をコントロールする手法が開示されている。しかし、この手法では、酸化合物をセルロースアセテートに添加した時点からその酸化合物の影響によりセルロースアセテートは化学的に加水分解反応を起こし、セルロースアセテートのDSが減少し始める。すなわち、この酸化合物を添加したセルロースアセテート組成物(製品)は、経時的にDSが減少するため、出発原料のセルロースアセテートのDSを維持し得ないものとなる。

【0008】セルロースアセテートのDSは製品の機能に大きく影響し、例えば、たばこ用フィルターでは、セルロースアセテートのDSが変わることによって、たばこの喫味が大きく変化する。従って、たばこ製品の品質管理上、たばこ用フィルターとしてのセルロースアセテートは、たばこを喫煙するまでの通常の環境下でそのDSが設計値から経時的に変化することは全く好ましくない。

【0009】また、上記酸化合物の存在下で生じるセルロースアセテートのアセチル基の化学的加水分解反応は、その進行に伴い、すなわちセルロースアセテートのDSの低下に伴い、酢酸を生成させる。すなわち、セルロースアセテートから離脱したアセチル基は酢酸として遊離する。この遊離した酢酸は、セルロースアセテート製品に強い酢酸臭を与える。種々の製品において、この酢酸臭は好ましい要素ではない。例えば、たばこ用フィルターでは、酢酸臭を呈することによってたばこの喫味は大きく悪化する。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明は、経時的なセルロースアセテートのDS値の変化と酢酸臭の発生を抑制し得るセルロースアセテートの生分解促進手段を提供することを課題とする。

【0011】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記課題を解決するために鋭意研究した結果、セルロースアセテートの分解を促進する所定の分解促進剤をその分解反応を抑制する所定の反応制御剤と複合化させることによって、セルロースアセテートの通常の使用条件では分解促進剤の分解促進作用を抑制し得、セルロースアセテートが水と接触したときに初めて複合体において反応制御剤が分解促進剤との複合化を解離して分解促進剤を遊離させ、もって分解促進剤の分解促進作用を発揮させることができることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0012】すなわち、上記課題は、本発明によれば、リンの酸素酸、硫黄の酸素酸および窒素の酸素酸、それら酸素酸の部分エステルもしくは水素塩、炭酸およびその水素塩、スルホン酸、並びにカルボン酸からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる分解促進剤と、窒素含有化合物、ヒドロキシ化合物、含酸素複素環式化合物、および含硫黄複素環式化合物からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる反応制御剤との複合体をセルロースアセテートに含有させることによって解決される。

【0013】セルロースアセテート、およびこのセルロースアセテートに含有された分解促進剤と反応制御剤との複合体を包含する本発明のセルロースアセテート組成物は、セルロースアセテートのDS値の経時的変化を抑制し得るので、設計通りの製品性能を維持するとともに酢酸臭の発生が抑制され、しかも水と接触して初めて分

解を開始する成形品を与える。

【0014】上記本発明のセルロースアセテート組成物は、繊維等の成形品として提供される。

【0015】本発明の他の側面によれば、セルロースアセテート繊維を含むたばこ用フィルタープラグであって、各セルロースアセテート繊維は少なくともその表面領域にリンの酸素酸、硫黄の酸素酸および窒素の酸素酸、それら酸素酸の部分エステルもしくは水素塩、炭酸およびその水素塩、スルホン酸、並びにカルボン酸からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる分解促進剤と、窒素含有化合物、ヒドロキシ化合物、含酸素複素環式化合物、および含硫黄複素環式化合物からなる群の中から選ばれた少なくとも1種の化合物からなる反応制御剤との複合体を含有することを特徴とするたばこ用フィルタープラグが提供される。

【0016】本発明において、セルロースアセテートは、2.0ないし2.6のDS値を有することが好ましい。

【0017】また、本発明において、分解促進剤は、リン酸、ポリリン酸、フィチン酸、リン酸スターチ、リン酸セルロース、リン酸水素カルシウム、レシチンおよびリン酸ジ2-エチルヘキシルエステル；並びにメタクリル酸2-ヒドロキシエチルリン酸エステル、メタクリル酸2-ヒドロキシエチルフェニルリン酸エステルおよびメタクリル酸2-ヒドロキシエチルアルキルリン酸エステル並びにこれらのポリマーもしくはコポリマーからなる群の中から選ばれた少なくとも1種からなることが好ましい。また、反応制御剤は、ピロリドン構造を有する化合物、オキサゾリドン構造を有する化合物、イミド構造を有する化合物、ピリジン構造を有する化合物、アミンオキシド構造を有する化合物、ピラジン構造を有する化合物、ポリビニルアルコールもしくはその誘導体、アルキルセルロース、ヒドロキシアルキルセルロース、ショ糖脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸アミド、および脂肪酸アルカノールアミドからなる群の中から選ばれた少なくとも1種からなることが好ましい。

【0018】本発明の好ましい態様において、分解促進剤は、セルロースアセテートに対し、0.01~40重量%の割合で含有され、および/または反応制御剤は、セルロースアセテートに対し0.01~50重量%の割合で含有される。

【0019】

【発明の実施の形態】以下、本発明をその実施の形態を含めて詳しく説明する。

【0020】本発明において使用されるセルロースアセ

テートは、セルロースアセテートであればよく、そのDS値に特に制限はない。例えば、DS2.0~2.6のセルロースジアセテート、DS2.6以上のセルローストリアセテート等を用いることができる。また、生分解性のよい領域であるDS2.0以下のセルロースアセテートを用いることもできる。特に、たばこ用フィルターを製造しようとする場合には、喫味の観点から、DS2.0~2.6のセルロースジアセテートが好ましく用いられる。

【0021】本発明においてセルロースアセテートに含有される複合体は、所定の分解促進剤と反応制御剤を化学的相互作用（例えば、水素結合等）により複合化したものである。

【0022】分解促進剤は、セルロースアセテートの化学的加水分解を促進させるものであり、本発明では、リンの酸素酸、硫黄の酸素酸および窒素の酸素酸、それら酸素酸の部分エステルもしくは水素塩、炭酸およびその水素塩、スルホン酸、並びにカルボン酸からなる群の中から選ばれる。これら化合物の2種以上の混合物も使用することができる。

【0023】酸素酸は、オキソ酸またはオキシ酸ともいわれるものであり、プロトンとして解離し得る水素が酸素原子に結合した酸であって、好ましくは一般式  $EO_n(OH)_m$

（ここで、Eは、リン、硫黄または窒素）で表されるものであり、適切な場合にはそれらの縮合物も含まれる。より具体的には、リンの酸素酸には、リン酸（本明細書において、リン酸とは、オルトリン酸を指す）、ピロリン酸、メタリン酸、ポリリン酸、次リン酸が含まれる。硫黄の酸素酸には、硫酸が含まれる。また、窒素の酸素酸には、硝酸、亜硝酸が含まれる。これらのもの以外の酸素酸としては、亜リン酸、次亜リン酸、次亜硝酸等がある。また、酸素酸の部分エステルは、酸素酸の全てではないヒドロキシル基がエステル化された化合物であり、例えば、リン酸の部分エステルには、 $PO(OR)(OH)_2$  および  $PO(OR)_2(OH)$  が含まれる。水素塩は、酸性塩ともいわれるもので、酸素酸の塩の電氣的陽性成分にカチオンで置換し得る水素イオンを含む化合物であり、水中で、当該塩が水素塩と平衡状態にある化合物については、その塩を含み、さらには、水酸化リン酸塩等のような複塩も含まれる。

【0024】反応制御剤は、水素結合等により上記分解促進剤と複合化して、セルロースアセテート成形品の通常の保存条件下では当該分解促進剤のセルロースアセテートに対する分解作用を抑制するものであり、水との接触によりその複合作用を解離して分解促進剤を遊離させその分解作用を発揮させるものであり、本発明では、窒素含有化合物、ヒドロキシ化合物、含酸素複素環式化合物、および含硫黄複素環式化合物からなる群の中から選ばれる。これら化合物の2種以上の混合物も用いられ

る。

【0025】窒素含有化合物は、その構造中に窒素を含む化合物であり、例えば、アンモニアやアミン類、アミノキシド類、アミド類、ウレタン類、イミド類、ニトロ化合物、ニトロソ化合物、含窒素複素環式化合物（窒素を複素環員として含む化合物）を例示することができる。ヒドロキシ化合物は、ヒドロキシル基（-OH）を有する化合物であり、例えば、アルコール類（多価アルコールを含む）、ポリビニルアルコール類、ポリグリセリン類、糖類等を例示することができる。含酸素複素環式化合物は、酸素を複素環員として含む化合物であり、含硫黄複素環式化合物は、硫黄を複素環員として含む化合物である。

【0026】本発明において、上記分解促進剤と反応制御剤とは化学的相互作用（例えば、水素結合等）により複合化させた状態でセルロースアセテートに含有されている。

【0027】ところで、このような複合体は、従って分解促進剤および反応制御剤は、安全であり、また大量かつ受け入れ可能な価格で供給されるものであることが望ましい。さらに、一般に、セルロースアセテートをたばこ用フィルター等を製造するために繊維状に成形する場合、紡糸ノズルからセルロースアセテート溶液（紡糸原液）を吐出させる紡糸法により製造されるが、これらの製造工程を考慮すると、本発明に用いられる分解促進剤および反応制御剤は、セルロースアセテートを溶解するための溶媒（例えば、アセトン、塩化メチレン/メタノール混合溶媒、ジメチルスルホキシド等）に可溶であるか、または溶媒に不溶な場合であっても、紡糸工程上、繊維の物性に影響のない程度までに微粉末化し得る化合物であるものが好ましい。

【0028】このような安全性と製造の容易さの観点およびセルロースアセテートに対する生分解性の促進効果の点から、本発明において用いる分解促進剤は、リン酸、ポリリン酸およびそれらの部分エステルもしくは水素塩であることが好ましい。そのような部分エステルもしくは水素塩としては、例えば、フィチン酸、リン酸スターチ、リン酸セルロース、リン酸水素カルシウム、レシチン、リン酸ジ2-エチルヘキシルエステル、HEMA（メタクリル酸2-ヒドロキシエチル）リン酸エステル、HEMAフェニルリン酸エステル、HEMAアルキルリン酸エステル、さらには、HEMAリン酸エステル、HEMAフェニルリン酸エステル、HEMAアルキルリン酸エステルのポリマーもしくはコポリマーを好ましく例示することができる。

【0029】また、上記安全性と製造の容易さの観点および酢酸臭の抑制効果の点から、本発明に用いる反応制御剤は、ピロリドン構造を有する化合物（例えば、2-ピロリドン、N-メチル-2-ピロリドン、ポリビニルピロリドン）、オキサゾリドン構造を有する化合物（例

えば、2-オキサゾリドン、3-メチル-2-オキサゾリドン、ポリビニルオキサゾリドン）、イミド構造を有する化合物（例えば、フタルイミド、コハク酸イミド、リボフラビン、ポリビニルフタルイミド）、ピリジン構造を有する化合物（例えば、ピリジン、ニコチン酸、ニコチン酸アミド、ポリビニルピリジン）、アミノキシド構造を有する化合物（例えば、N-メチルモルホリンN-オキシド、N-メチルピペリジンN-オキシド、トリエチルアミンN-オキシド）、ピラジン構造を有する化合物（例えば、ピラジン、メチルピラジン）、ポリビニルアルコールもしくはその誘導体（例えば、ポリビニルアセタール、ポリビニルブチラール）、アルキルセルロース（例えば、メチルセルロース、エチルセルロース）、ヒドロキシアルキルセルロース（例えば、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシブチルセルロース）、ショ糖脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸アミド、または脂肪酸アルコールアミドからなることが好ましい。これらの2種以上の混合物を用いることもできる。

【0030】本発明においては、分解促進剤および反応制御剤の添加量により、セルロースアセテートの生分解速度および成形製品の酢酸臭抑制レベルを設計することができる。

【0031】より具体的には、分解促進剤の添加量は、目的とする生分解速度により任意に設定することができる。例えば、速く生分解させようとするときは、多量の分解促進剤を添加すればよい。しかし、得られるセルロースアセテート組成物の成形性を考慮すると、分解促進剤は、セルロースアセテートに対し、0.01~40重量%の割合で添加することが好ましく、0.01~15重量%の割合で添加することがさらに好ましい。

【0032】また、反応制御剤の添加量は、目的とする酢酸臭の抑制レベルに応じて設定することができる。例えば、成形品の酢酸臭をより一層抑制する場合には、それだけ多量の反応制御剤を添加すればよい。しかし、反応抑制剤の添加量が多すぎると、セルロースアセテート組成物の成形性が低下する。他方、反応制御剤の量が少なすぎると、酢酸臭の抑制効果が期待できない。以上の観点から、反応制御剤の添加量は、セルロースアセテートに対し0.01~50重量%であることが好ましく、セルロースアセテートに対して0.01~25重量%であることがさらに好ましい。また、セルロースアセテート成形品の酢酸臭発生を完全に抑制しようとするときは、反応制御剤は分解促進剤の添加量に対し、化学当量もしくはそれ以上であることが望ましい。

【0033】本発明のセルロースアセテート組成物は、

本発明の複合体を含有させること以外は通常の方法により種々の構造に成形することができる。例えば、セルロースアセテートのアセトン、塩化メチレン等の溶液に反応制御剤および分解促進剤を添加した後通常の手法により成形する方法、可塑剤等を配合した熱成形可能なセルロースアセテートに反応制御剤および分解促進剤を溶解混合した後、通常の手法により成形する方法等が挙げられる。

【0034】また、たばこ用フィルターに用いられるセルロースアセテート繊維は、例えば、以下のようにして製造することができる。

【0035】まず、セルロースアセテートと本発明の複合体を含有する溶液（紡糸原液）を調製する。溶媒としては、塩化メチレン、アセトン等の単独溶媒、あるいは塩化メチレンとメタノール等の混合溶媒を使用することができる。セルロースアセテートの濃度は、一般に、15～35重量%であり、好ましくは18～30重量%である。この紡糸原液には、分解促進剤と反応制御剤とは、上記範囲の割合で含有される。この紡糸原液は、セルロースアセテート用の溶媒に分解促進剤と反応制御剤を溶解もしくは分散させた溶液と、セルロースアセテート用の溶媒にセルロースアセテートを溶解させた溶液とを混合することによって、または、セルロースアセテートの溶液に直接、分解促進剤と反応制御剤を添加することによって調製することができる。後者の場合、分解促進剤と反応制御剤の添加の順序は、反応制御剤の効果を効率的に引き出すために、まず反応制御剤を添加し、それから分解促進剤を添加することが好ましい。

【0036】このようにして得た本発明の複合体を含有するセルロースアセテート紡糸原液を紡糸ノズル装置に供給し、高温雰囲気中に吐出する乾式紡糸法により紡糸し、セルロースアセテート繊維を得る。また、乾式紡糸ではなく、湿式紡糸を行ってもよい。さらに紡糸に際しては、上記のように、均一分散された紡糸原液をそのまま繊維状に紡糸してもよいが、複合体を含有するセルロースアセテート紡糸原液と、これらの化合物が添加されていないセルロースアセテート紡糸原液とを用いて、少なくとも複合体を含有するセルロースアセテートが繊維表面に現れるように、繊維サイドバイサイド型、または鞘芯型等に複合紡糸する方法を用いることもできる。さらに紡糸原液の調製に際しては、その特性を損なわない範囲でその他の添加剤を併用することもできる。例えば、酸化チタンなどの光分解促進剤を含有させることにより、本発明の生分解性促進と相まって、セルロースアセテート組成物の分解性をさらに高めることができる。また、例えば、紡糸原液の均一性を高めるために、あるいは粘度調節のために、分散剤、乳化剤、可溶化剤、粘度調節剤等を併用してもよい。この記載からもわかるように、本発明のたばこ用フィルタープラグを構成する各セルロースアセテート繊維は、少なくともその表面領域

に本発明の複合体を含有する。なお、セルロースアセテート繊維は、フィブリルの形態にあってもよい。フィブリルの形態にある場合には、以下述べるもののような他の材料、または通常の繊維の形態にある本発明のセルロースアセテートと併用することが好ましい。

【0037】このようにして得られたセルロースアセテート繊維は、慣用の方法によりたばこ用フィルターとして製造される。その製造方法ならびにフィルター構造には特に制限はなく、例えば、以下のようにして製造することができる。

【0038】すなわち、上記セルロースアセテート繊維をトウの形態とし、これを、たばこフィルタープラグ巻上装置にて、開繊し、可塑剤（例えば、トリアセチルグリセリン）を添着した後、繊維ロッド形状に成形し、必要な長さに切断してフィルタープラグを形成する。なお、フィルタープラグの作製を容易にするために、繊維束としての総繊維度を適宜設定する。あるいは、セルロースアセテート繊維を1～100mmにカットしてなる短繊維から作製した不織布シートを用い、通常のプラグ巻上装置でロッド状に成形することもできる。本発明のセルロースアセテート繊維は、単独で使用してフィルターを製造してもよく、あるいは本発明のセルロースアセテート繊維を一構成材料として、これに他の構成材料を併用することによってもフィルターを製造し得る。そのような他の構成材料としては、天然もしくは半合成材料（例えば、パルプ、リントー、木綿、麻、ビスコースレーヨン、銅アンモニアレーヨン、リヨセル、羊毛等、あるいはポリヒドロキシアルカノエート等の微生物生産系の生分解性高分子）、通常の合成材料（例えば、ポリプロピレン等のポリオレフィン、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリアミド）、生分解性合成材料（例えば、ポリ乳酸、ポリカプロラクトン、ポリブチレンサクシネート、ポリビニルアルコール）、光分解性材料等を繊維や不織布の形態で用いることができる。その場合、特に生分解性に優れた材料を使用することが好ましい。また、繊維ではないが、でんぷんの発泡体も生分解性に優れた材料として使用できる。

【0039】また、上記製造方法の中で、可塑剤の代わりに水溶性接着剤を用いることもできる。可塑剤を使用した場合には、セルロースアセテート繊維同士は溶融接着により強固に結合しており、その結果、自然環境中に投棄されたたばこ用フィルターは長期間安定的にロッド形状を保持している。これに対し、水溶性接着剤を使用した場合には、セルロースアセテート繊維同士の接着点は、自然環境中に投棄された際に、多量の水（雨、海水、川水、湖水等）によって容易に解離される。その結果、たばこ用フィルターは、ロッド形状を容易に崩壊することができる。ロッド形状が崩壊したセルロースアセテート繊維は、自然環境中では、例えば地表に広がりをもって展開され、生分解速度に影響する素材の微生物理

境との接触面積が大きくなり、結果として、たばこ用フィルターの分解性はより一層促進される。そのため、本発明のセルロースアセテートの生分解性促進と相まって、たばこ用フィルターの分解性をさらに高めることができる。

【0040】また、セルロースアセテート繊維の形状は、ステープル、フィラメントのいずれであってもよいが、本発明のたばこ用フィルターを構成するセルロースアセテート繊維としては、繊維トウと呼ばれる形状とすることが好ましく、トウの総繊維度は任意とすることができる。例えば、0.5から15デニールの繊維を3,000~500,000本収束させ、25mm長さ当り10~50個の捲縮を付与したバンド状の繊維トウが好ましい。さらに、各繊維の断面形状は、丸形、四角形等特に限定されないが、たばこ用フィルターとしての沔過性能の観点から、多葉状の断面形状が好ましく、その中でも製造工程安定性の点から、Y字状の断面形状が好ましく用いられる。

【0041】この添加剤を含有するセルロースアセテート組成物およびたばこ用フィルターは、以下の特徴を持つ。すなわち、セルロースアセテート成形品の製造工程中および成形製品の段階では、分解促進剤は反応制御剤との化学的相互作用（例えば、水素結合等）により安定化され、その結果、セルロースアセテートの化学的加水分解反応を生じさせることがない。従って、当該成形製品は本発明の複合体を含有しない通常のセルロースアセテート成形品の性質を呈する。しかし、本発明の成形製品が自然環境中に投棄されると、これに含まれる分解促進剤と反応制御剤の複合体は、多量の水（雨、海水、川水、湖水等）によってその相互作用を解離し、分解促進剤が遊離の状態となる。そこで初めて、分解促進剤はその機能（分解促進機能）を発現する。すなわち、分解促進剤とともに反応制御剤を併用することによって、セルロースアセテートの生分解性の促進をもたらす分解促進剤の反応性を成形製品中と自然環境中で制御することが可能となる。このように本発明の成形製品は、製品として通常に使用される段階では、セルロースアセテートの化学的加水分解反応は進行しないことから、出発原料のセルロースアセテートの性質（DS）を維持しており、また、酢酸による臭気も生じない。そして、自然環境中では、水との接触により反応制御剤から解離した分解促進剤の作用によってセルロースアセテート成形品は顕著に生分解される。

【0042】

【実施例】以下、本発明を実施例により説明する。

【0043】実施例1

セルロースアセテートフレーク（DS=2.5）を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、ポリビニルピロリドン（平均分子量（重量平均分子量。以下、同じ）2

5,000）をセルロースアセテートに対して25重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。ついで、リン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、再び均一になるまで攪拌した。こうして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。得られたフィルムから、複合体を構成する分解促進剤および反応制御剤は、フィルム中に均一に溶解、分散しており、セルロースアセテートフィルムの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

【0044】実施例2

セルロースアセテートフレーク（DS=2.5）を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、2-ピロリドンセルロースアセテートに対して25重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。ついで、リン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、再び均一になるまで攪拌した。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。得られたフィルムから、複合体を構成する分解促進剤および反応制御剤は、フィルム中に均一に溶解、分散しており、セルロースアセテートフィルムの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

【0045】実施例3

セルロースアセテートフレーク（DS=2.5）を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、N-メチルモルホリンN-オキシドをセルロースアセテートに対して25重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。ついで、リン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、再び均一になるまで攪拌した。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。得られたフィルムから、複合体を構成する分解促進剤および反応制御剤は、フィルム中に均一に溶解、分散しており、セルロースアセテートフィルムの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

【0046】実施例4

セルロースアセテートフレーク（DS=2.5）を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、ポリビニルピロリドン（平均分子量2,000）をセルロースアセテートに対して25重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。ついで、リン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、再び均一になるまで攪拌した。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。得られたフィルムか



ら、複合体を構成する分解促進剤および反応制御剤は、フィルム中に均一に溶解、分散しており、セルロースアセテートフィルムの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

#### 【0047】実施例5

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、ポリビニルピロリドン(平均分子量25,000)をセルロースアセテートに対して25重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。ついで、ポリリン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、再び均一になるまで攪拌した。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。得られたフィルムから、複合体を構成する分解促進剤および反応制御剤は、フィルム中に均一に溶解、分散しており、セルロースアセテートフィルムの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

#### 【0048】実施例6

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、2-ピロリドンセルロースアセテートに対して25重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。ついで、ポリリン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、再び均一になるまで攪拌した。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。得られたフィルムから、複合体を構成する分解促進剤および反応制御剤は、フィルム中に均一に溶解、分散しており、セルロースアセテートフィルムの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

#### 【0049】実施例7

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、N-メチルモルホリンN-オキシドをセルロースアセテートに対して25重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。ついで、ポリリン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、再び均一になるまで攪拌した。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。得られたフィルムから、複合体を構成する分解促進剤および反応制御剤は、フィルム中に均一に溶解、分散しており、セルロースアセテートフィルムの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

#### 【0050】実施例8

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、ポリビニルブチラール(平均分子量2,000)をセルロースアセテートに対して25重量%になるよう添加し、攪拌して均一にした。ついで、ポリリン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、再び均一になるまで攪拌した。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。得られたフィルムから、複合体を構成する分解促進剤および反応制御剤は、フィルム中に均一に溶解、分散しており、セルロースアセテートフィルムの成形性に影響を与えるものではないことを確認した。

#### 【0051】比較例1

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、リン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。

#### 【0052】比較例2

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液に、ポリリン酸をセルロースアセテートに対して5重量%の割合で添加し、攪拌して均一にした。このようにして得たセルロースアセテート溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。

#### 【0053】比較例3

セルロースアセテートフレーク(DS=2.5)を濃度28重量%になるようアセトンに溶解させ、セルロースアセテート溶液を得た。この溶液を、ガラス板上に流延し、乾燥して、厚さ約100 $\mu$ mのセルロースアセテートフィルムを得た。

【0054】<酢酸濃度の測定および酢酸臭気レベルの評価>実施例1～実施例8および比較例1～比較例3で得られたセルロースアセテートフィルムを用いて、それらフィルムの酢酸臭気レベルを評価した。酢酸臭気レベルは、製造直後の各フィルムから直ちに円形片(直径5cm)を打ち抜き、これを臭気袋に詰め、50℃の恒温室に放置し、1週間後の臭気袋内の酢酸濃度をガス検知管法により測定した。また同時に、官能試験法によりフィルムの酢酸臭気レベルを評価した。結果を表1に示す。

#### 【0055】

#### 【表1】



表 1 各種セルロースアセテートフィルムの  
酢酸臭気評価結果

試料	酢酸濃度(ppm)	酢酸臭気レベル*
実施例1	0.8	0
実施例2	12.0	1~2
実施例3	0.2	0
実施例4	31.0	2
実施例5	0.8	0
実施例6	12.0	1~2
実施例7	0.1	0
実施例8	30.0	2
比較例1	40.0	3
比較例2	44.0	3
比較例3	0.8	0

\*酢酸臭気レベル

- 0: 臭気を感じない  
1: 若干臭気を感じる  
2: 臭気を感じる  
3: 強く臭気を感じる

【0056】以上の結果より、反応制御剤を併用することによって、分解促進剤を添加したことに起因する酢酸臭の発生レベルを抑制できることがわかる。すなわち、セルロースアセテート成形品（フィルム）の製造工程およびその製品の段階では、分解促進剤は反応制御剤により安定化され、分解促進剤の作用が抑制されていることがわかる。また、反応抑制剤の種類を選択することによって、分解促進の抑制の程度を任意に設定することができることもわかる。

【0057】実施例9

ポリビニルピロリドン（平均分子量25,000）の添加量を、セルロースアセテートに対して5重量%、10\*

\*重量%、15重量%、20重量%、30重量%の割合で用いた以外は、実施例1と同様にして、5種のセルロースアセテートフィルムを成形した。

【0058】実施例1と比較例1ならびに本実施例で得た各種添加量のセルロースアセテートフィルムを用いて、セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとポリビニルピロリドンの添加量との関係を調べた。その結果を表2に示す。なお、評価試験は上記の酢酸濃度の測定および酢酸臭気レベルの評価における方法に従って行った。

【0059】

【表2】

表 2 セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルと  
ポリビニルピロリドンの添加量との関係

ポリビニルピロリドン 添加量(重量%)	酢酸濃度 (ppm)	酢酸臭気レベル
0	40.0	3
5	5.0	1
10	1.7	0~1
15	1.1	0
20	0.8	0
25	0.8	0
30	0.8	0

【0060】以上の結果より、反応制御剤の添加量を選択することによって、分解促進剤の添加に起因する酢酸臭の発生レベルを任意に設定することができることがわかる。

【0061】実施例10

\*N-メチルモルホリンN-オキシドの添加量をセルロースアセテートに対して1重量%、5重量%、10重量%、15重量%、20重量%、30重量%の割合で用いた以外は、実施例3と同様にしてセルロースアセテートフィルムを成形した。

※50

【0062】実施例3と比較例1ならびに本実施例で得た各種添加量のセルロースアセテートフィルムを用いて、セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとN-メチルモルホリンN-オキシドの添加量との関係調べた。その結果を表3に示す。なお、評価試験は上記\*

\*の酢酸濃度の測定および酢酸臭気レベルの評価における方法に従って行った。

【0063】

【表3】

表3 セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとN-メチルモルホリンN-オキシドの添加量との関係

N-メチルモルホリンN-オキシド 添加量(重量%)	酢酸濃度 (ppm)	酢酸臭気レベル
0	40.0	3
1	3.2	1
5	0.4	0
10	0.3	0
15	0.3	0
20	0.2	0
25	0.2	0
30	0.1	0

【0064】以上の結果より、反応制御剤の添加量を選択することによって、分解促進剤添加に起因する酢酸臭の発生レベルを任意に設定することができることがわかる。

【0065】実施例11

ポリビニルピロリドン(平均分子量25,000)の添加量をセルロースアセテートに対して10重量%とし、リン酸の添加量をセルロースアセテートに対して1重量%とした以外は、実施例1と同様にして、セルロースア※

※セテートフィルムを得た。

【0066】得られたセルロースアセテートフィルムを用いて、セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとリン酸の添加量との関係を調べた。その結果を表4に示す。なお、評価試験は上記の酢酸濃度の測定および酢酸臭気レベルの評価における方法に従って行った。

【0067】

【表4】

表4 セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとリン酸の添加量との関係(反応制御剤:ポリビニルピロリドン(添加量10重量%))

リン酸添加量(重量%)	酢酸濃度(ppm)	酢酸臭気レベル
1	0.9	0
5	1.7	0~1

【0068】以上の結果より、分解促進剤の添加量を選択することによって、酢酸臭の発生レベルを任意に設定することができることがわかる。

【0069】実施例12

N-メチルモルホリンN-オキシドの添加量をセルロースアセテートに対して1重量%とし、リン酸の添加量をセルロースアセテートに対して1重量%とした以外は、実施例3と同様にして、セルロースアセテートフィルム★

★を得た。

【0070】得られたセルロースアセテートフィルムを用いて、セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとリン酸の添加量との関係を調べた。その結果を表5に示す。なお、評価試験は上記の酢酸濃度の測定および酢酸臭気レベルの評価における方法に従って行った。

【0071】

【表5】

表5 セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとリン酸の添加量との関係(反応制御剤:N-メチルモルホリンN-オキシド(添加量1重量%))

リン酸添加量(重量%)	酢酸濃度(ppm)	酢酸臭気レベル
1	0.3	0
5	3.2	1

【0072】以上の結果より、分解促進剤の添加量を選択することによって、酢酸臭の発生レベルを任意に設定することができることがわかる。

☆【0073】実施例13

実施例1、実施例3、実施例5、実施例7および比較例

☆50 1~比較例3で得られたセルロースアセテートフィルム

を用いて、それらフィルムが多量の水に接触した際に示すフィルムの酸性度を評価した。すなわち、製造したフィルムから円形片（直径5cm）を打ち抜き、これを100mLの水中に浸漬した状態で室温に1日間放置し、\*

\* その時の浸漬水のpHを通常のpHメーターで測定した。結果を表6に示す。

【0074】

【表6】

表 6 セルロースアセテートフィルムの水に接触した際の酸性度評価結果

試料	浸漬水のpH値
実施例1	2.3
実施例3	4.4
実施例5	2.5
実施例7	4.5
比較例1	2.3
比較例2	2.5
比較例3	6.3

【0075】以上の結果より、いずれの実施例においても、分解促進剤は、多量の水との接触により、併用する反応制御剤の影響を受けず、その機能を発現することができる。すなわち、本発明によるセルロースアセテート組成物中に含有される分解促進剤と反応制御剤の複合体は、多量の水によってその相互作用を解離し、分解促進剤が遊離の状態となることがわかる。

【0076】実施例14

実施例1、実施例2、実施例3、実施例5、実施例6および

※よび比較例1～比較例3で得られたセルロースアセテートフィルムを用いて、それらフィルムの生分解性を評価した。すなわち、製造した各フィルムから円形片（直径5cm）を打ち抜き、これを土壌中に埋設し、60日後のフィルムの重量減少率を測定した。重量減少率は、土壌埋設前後のフィルム重量（乾燥重量）から算出した。結果を表7に示す。

【0077】

【表7】

表 7 セルロースアセテートフィルムの生分解性評価結果

試料	重量減少率(%)	フィルムの外観観察
実施例1	41.6	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
実施例2	37.1	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
実施例3	30.1	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
実施例5	27.9	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
実施例6	29.3	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
比較例1	17.5	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
比較例2	21.0	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
比較例3	3.0	顕著な変化なし。

【0078】以上の結果より、いずれの実施例においても、セルロースアセテート組成物の生分解速度の促進が達成されていることがわかる。すなわち、酢酸臭を抑制する反応制御剤の併用は、分解促進剤によるセルロースアセテートの生分解速度の促進効果に負の影響を及ぼすものではないことがわかる。

★

★【0079】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、経時的なセルロースアセテートのDS値の変化と酢酸臭の発生を抑制し得、しかも生分解性に優れたセルロースアセテート成形品が提供される。

102(a)

PAT-NO: JP411279201A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 11279201 A

TITLE: MOLDED ARTICLE OF BIODEGRADABLE  
CELLULOSE ACETATE AND  
FILTER PLUG FOR TOBACCO

PUBN-DATE: October 12, 1999

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

YAMASHITA, YOICHIRO

COUNTRY

N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME

JAPAN TOBACCO INC

COUNTRY

N/A

APPL-NO: JP10086769

APPL-DATE: March 31, 1998

INT-CL (IPC): C08B003/06, A24D003/10

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a means for accelerating the biodegradation of cellulose acetate, capable of suppressing the change of a DS value (number of acetyl groups based on a glucose unit skeleton) and the generation of a smell of acetic acid.

SOLUTION: This biodegradable cellulose acetate molded article is obtained by containing a complex material of a degradation accelerator consisting of at least one kind of compound selected from the group consisting of an oxygen acid

of phosphorus, sulfur or nitrogen, a partial ester or a hydrogen salt of these oxygen acids, carbonic acid and its hydrogen salt, a sulfonic acid and a carboxylic acid, with a reaction regulating agent consisting of at least one kind of compound selected from the group consisting of a nitrogen-containing compound, a hydroxy compound, an oxygen-containing heterocyclic ring compound and a sulfur-containing heterocyclic ring compound in a cellulose acetate.

COPYRIGHT: (C) 1999, JPO

**\* NOTICES \***

**Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1] The partial ester or the hydrogen salt of the oxygen acid of Lynn, a sulphuric oxygen acid and the oxygen acid of nitrogen, and these oxygen acids, The decomposition accelerator which consists of at least one sort of compounds chosen from the groups which consist of carbonic acid and its hydrogen salt, a sulfonic acid, and a carboxylic acid, A nitrogen content compound, a hydroxy compound, an oxygenated heterocyclic compound, And mold goods fabricated from the biodegradability cellulose acetate which made the cellulose acetate contain complex with the reaction control agent which consists of at least one sort of compounds chosen from the groups which consist of a sulfur-containing heterocyclic compound.

[Claim 2] Mold goods according to claim 1 with which this cellulose acetate is characterized by having DS value of 2.0 or 2.6.

[Claim 3] Mold goods according to claim 1 or 2 characterized by the bird clapper from at least one sort chosen from the groups which this decomposition accelerator becomes from phosphoric-acid, polyphosphoric acid, phytic-acid, phosphoric-acid starch, phosphoric-acid cellulose, calcium hydrogenphosphate, lecithin, and \*\*\*\*\* 2-ethylhexyl ester; and methacrylic-acid 2-hydroxyethyl phosphoric ester, methacrylic-acid 2-hydroxyethyl phenyl phosphoric ester, methacrylic-acid 2-hydroxyethyl alkyl phosphoric ester and these polymer, or a copolymer.

[Claim 4] The compound with which this reaction control agent has pyrrolidone structure, the compound which has oxazolidone structure, The compound which has imido structure, the compound which has pyridine structure, the compound which has amine-oxide structure, The compound which has pyrazine structure, polyvinyl alcohol, or its derivative, An alkyl cellulose, a hydroxyalkyl cellulose, sucrose fatty acid ester, Propylene glycol fatty acid ester, a sorbitan fatty acid ester, A glycerine fatty acid ester, polyoxyethylene glycerine fatty acid ester, Polyoxyethylene sorbitan fatty acid ester, polyoxyethylene sorbitol fatty acid ester, The claim 1 characterized by the bird clapper from at least one sort chosen from the groups which consist of polyoxyethylene fatty acid amide and fatty acid alkanolamide, or mold goods of three given in any 1 term.

[Claim 5] The claim 1 to which this decomposition accelerator is characterized by containing at 0.01 - 40% of the weight of a rate to a cellulose acetate, or mold goods of four given in any 1 term.

[Claim 6] The claim 1 to which this reaction control agent is characterized by containing at 0.01 - 50% of the weight of a rate to a cellulose acetate, or mold goods of five given in any 1 term.

[Claim 7] The claim 1 in the form of fiber, or mold goods of six given in any 1 term.

[Claim 8] It is a filter plug for tobacco containing a cellulose acetate fiber. At least each cellulose acetate fiber to the surface field The oxygen acid of Lynn, The decomposition accelerator which consists of at least one sort of compounds chosen from the groups which consist of the partial ester of a sulphuric oxygen acid and the oxygen acid of nitrogen, and these oxygen acids or a hydrogen salt, carbonic acid and its hydrogen salt, a sulfonic acid, and a carboxylic acid, The filter plug for tobacco characterized by containing complex with the reaction control agent which consists of at least one sort of compounds chosen from the groups which consist of a nitrogen content compound, a hydroxy compound, an oxygenated heterocyclic compound, and a sulfur-containing heterocyclic compound.

[Claim 9] The filter plug for tobacco according to claim 8 to which this cellulose acetate is characterized by having DS value of 2.0 or 2.6.

[Claim 10] The filter plug for tobacco according to claim 8 or 9 characterized by the bird clapper from at least one sort chosen from the groups which this decomposition accelerator becomes from phosphoric-acid, polyphosphoric acid, phytic-acid, phosphoric-acid starch, phosphoric-acid cellulose, calcium hydrogenphosphate, lecithin, and \*\*\*\*\* 2-ethylhexyl ester; and methacrylic-acid 2-hydroxyethyl phosphoric ester, methacrylic-acid 2-hydroxyethyl phenyl phosphoric ester, methacrylic-acid 2-hydroxyethyl alkyl phosphoric ester and these polymer, or a copolymer.

[Claim 11] The compound with which this reaction control agent has pyrrolidone structure, the compound which has oxazolidone structure, The compound which has imido structure, the compound which has pyridine structure, the compound which has amine-oxide structure, The compound which has pyrazine structure, polyvinyl alcohol, or its derivative, An alkyl cellulose, a hydroxyalkyl cellulose, sucrose fatty acid ester, Propylene glycol fatty acid ester, a sorbitan fatty acid ester, A glycerine fatty acid ester, polyoxyethylene glycerine fatty acid ester, Polyoxyethylene sorbitan fatty acid ester, polyoxyethylene sorbitol fatty acid ester, The claim 8 characterized by the bird clapper from at least one sort chosen from the groups which consist of polyoxyethylene fatty acid amide and fatty acid alkanolamide, or the filter plug for tobacco of ten given in any 1 term.

[Claim 12] The claim 8 to which this decomposition accelerator is characterized by containing at 0.01 or 40% of the weight of a rate to a cellulose acetate, or the filter plug for tobacco of 11 given in any 1 term.

[Claim 13] The claim 8 to which this reaction control agent is characterized by containing at 0.01 - 50% of the weight of a rate to

a cellulose acetate, or the filter plug for tobacco of 12 given in any 1 term.

---

[Translation done.]



## \* NOTICES \*

**Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] this invention relates to biodegradability cellulose-acetate mold goods, its manufacture method, and the filter plug for smoking goods.

[0002]

[Description of the Prior Art] In addition to this, the cellulose acetate is extensively used as mold goods by injection molding, extrusion molding, etc. as a film as various mold goods as fiber for the textile fabrics for example, the filter material for tobacco, for garments, etc.

[0003] A cellulose acetate acetic-ester-izes a cellulose and is essentially the matter which can be biodegraded. However, a cellulose acetate cannot necessarily say biodegradability with it being good in fact.

[0004] That is, though the mold goods which consist of a cellulose acetate are laid underground for example, into soil, the original form is still stopped in one - two years, and by the time these mold goods are biodegraded completely, very long time will be required. Since reclamation is presented with these mold goods as waste, they may be left in natural environment depending on the case, without being collected as waste. Therefore, it is pressing need to promote the biodegradability of a cellulose acetate.

[0005] Various researches are done about the biodegradability of a cellulose acetate under such a situation. It depends for those research report \*\*\*\* and the biodegradation speed of a cellulose acetate on DS (the number of the acetyl groups per Degree of Substitution: glucose unit frame) of a cellulose acetate. That is, if DS of a cellulose acetate decreases, the biodegradation speed of a cellulose acetate will become quick. Moreover, the biodegradation mechanism is considered as follows.

[0006] The acetyl group of a cellulose acetate is first cut by the extracellular enzyme emitted from a microorganism, and, as a result, DS of a cellulose acetate decreases. Then, the cellulose acetate to which this DS decreased receives zymolysis easily, and, finally utilization is carried out to a carbon dioxide and water in response to microorganism metabolism by the cellulase which exists widely in environment. Here, it is thought that the rate-determining step of biodegradation speed is in cutting of the first acetyl group.

[0007] Based on these knowledge, some technique of promoting the biodegradation speed of a cellulose acetate is proposed. For example, the technique of controlling the biodegradability of a cellulose acetate is indicated by JP, 6-199901, A by adding an acid compound with a larger acid dissociation constant than an acetic acid to a cellulose acetate. However, by this technique, a cellulose acetate starts a adding-water decomposition reaction from the time of adding an acid compound to a cellulose acetate chemically under the influence of the acid compound, and DS of a cellulose acetate begins to decrease. That is, since DS decreases with time, the cellulose-acetate constituent (product) which added this acid compound cannot maintain DS of the cellulose acetate of a start raw material.

[0008] When DS of a cellulose acetate influences the function of a product greatly, for example, DS of a cellulose acetate changes with the filter for tobacco, \*\*\*\* of tobacco changes a lot. Therefore, the cellulose acetate as a filter for tobacco of the DS changing from a design value with time under the usual environment until it smokes tobacco is not desirable at all on quality control of a tobacco product.

[0009] Moreover, the chemical adding-water decomposition reaction of the acetyl group of the cellulose acetate produced under existence of the above-mentioned acid compound makes an acetic acid generate with the fall of DS of a cellulose acetate with the advance. That is, the acetyl group which seceded from the cellulose acetate separates as an acetic acid. This acetic acid that separated gives an acetic-acid smell strong against a cellulose-acetate product. In various products, this acetic-acid smell is not a desirable element. For example, with the filter for tobacco, \*\*\*\* of tobacco gets worse greatly by presenting an acetic-acid smell.

[0010]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Therefore, this invention makes it a technical problem to offer the biodegradation promotion means of the cellulose acetate which can suppress DS value change of a cellulose acetate with time, and generating of an acetic-acid smell.

[0011]

[Means for Solving the Problem] When this invention person makes the predetermined decomposition accelerator which promotes decomposition of a cellulose acetate composite-ize with the predetermined reaction control agent which suppresses the decomposition reaction as a result of inquiring wholeheartedly, in order to solve the above-mentioned technical problem A

decomposition promotion operation of a decomposition accelerator can be suppressed on the anticipated-use conditions of a cellulose acetate. When a cellulose acetate contacted water, in complex, a reaction control agent dissociates composite-ization with a decomposition accelerator for the first time, and the decomposition accelerator was separated, and it finds out that it can have and a decomposition promotion operation of a decomposition accelerator can be demonstrated, and came to complete this invention.

[0012] According to this invention, the above-mentioned technical problem Namely, the oxygen acid of Lynn, a sulphuric oxygen acid, and the oxygen acid of nitrogen, The decomposition accelerator which consists of at least one sort of compounds chosen from the groups which consist of the partial ester of these oxygen acids or a hydrogen salt, carbonic acid and its hydrogen salt, a sulfonic acid, and a carboxylic acid, It is solved by making a cellulose acetate contain complex with the reaction control agent which consists of at least one sort of compounds chosen from the groups which consist of a nitrogen content compound, a hydroxy compound, an oxygenated heterocyclic compound, and a sulfur-containing heterocyclic compound.

[0013] Since with-time change of DS value of a cellulose acetate can be suppressed, while maintaining the product performance as a design, generating of an acetic-acid smell is suppressed, and the cellulose-acetate constituent of this invention which includes the complex of a cellulose acetate, and the decomposition accelerator and reaction control agent contained in this cellulose acetate gives the mold goods which start decomposition only after moreover contact water.

[0014] The cellulose-acetate constituent of the above-mentioned this invention is offered as mold goods, such as fiber.

[0015] According to other sides of this invention, it is a filter plug for tobacco containing a cellulose acetate fiber. At least each cellulose acetate fiber to the surface field The oxygen acid of Lynn, The decomposition accelerator which consists of at least one sort of compounds chosen from the groups which consist of the partial ester of a sulphuric oxygen acid and the oxygen acid of nitrogen, and these oxygen acids or a hydrogen salt, carbonic acid and its hydrogen salt, a sulfonic acid, and a carboxylic acid, The filter plug for tobacco characterized by containing complex with the reaction control agent which consists of at least one sort of compounds chosen from the groups which consist of a nitrogen content compound, a hydroxy compound, an oxygenated heterocyclic compound, and a sulfur-containing heterocyclic compound is offered.

[0016] As for a cellulose acetate, in this invention, it is desirable to have DS value of 2.0 or 2.6.

[0017] Moreover, in this invention, a decomposition accelerator has at least one sort chosen from the groups which consist of phosphoric-acid, polyphosphoric acid, phytic-acid, phosphoric-acid starch, phosphoric-acid cellulose, calcium hydrogenphosphate, lecithin, and \*\*\*\*\* 2-ethylhexyl ester; and methacrylic-acid 2-hydroxyethyl phosphoric ester, methacrylic-acid 2-hydroxyethyl phenyl phosphoric ester, methacrylic-acid 2-hydroxyethyl alkyl phosphoric ester and these polymer, or a copolymer to a desirable bird clapper. Moreover, the compound with which a reaction control agent has pyrrolidone structure, the compound which has oxazolidone structure, The compound which has imido structure, the compound which has pyridine structure, the compound which has amine-oxide structure, The compound which has pyrazine structure, polyvinyl alcohol, or its derivative, An alkyl cellulose, a hydroxyalkyl cellulose, sucrose fatty acid ester, Propylene glycol fatty acid ester, a sorbitan fatty acid ester, A glycerine fatty acid ester, polyoxyethylene glycerine fatty acid ester, At least one sort chosen from the groups which consist of polyoxyethylene sorbitan fatty acid ester, polyoxyethylene sorbitol fatty acid ester, polyoxyethylene fatty acid amide, and fatty acid alkanolamide to a bird clapper is desirable.

[0018] In the desirable mode of this invention, a decomposition accelerator is contained at 0.01 - 40% of the weight of a rate to a cellulose acetate, and/or a reaction control agent is contained at 0.01 - 50% of the weight of a rate to a cellulose acetate.

[0019]

[Embodiments of the Invention] Hereafter, this invention is explained in detail including the form of the operation.

[0020] There is especially no limit in the DS value that the cellulose acetate used in this invention should just be a cellulose acetate. For example, the cellulose diacetate of DSs 2.0-2.6, a 2.6 or more-DS cellulose triacetate, etc. can be used. Moreover, a 2.0 or less DS [ which is the good field of biodegradability ] cellulose acetate can also be used. When it is going to manufacture the filter for tobacco especially, the cellulose diacetate of DSs 2.0-2.6 is preferably used from a viewpoint of \*\*\*\*.

[0021] The complex contained in a cellulose acetate in this invention composite-izes a predetermined decomposition accelerator and a predetermined reaction control agent according to chemical interactions (for example, hydrogen bond etc.).

[0022] A decomposition accelerator promotes chemical hydrolysis of a cellulose acetate, and is chosen by this invention from the groups which consist of the partial ester of the oxygen acid of Lynn, a sulphuric oxygen acid and the oxygen acid of nitrogen, and these oxygen acids or a hydrogen salt, carbonic acid and its hydrogen salt, a sulfonic acid, and a carboxylic acid. Two or more sorts of mixture of these compounds can also be used.

[0023] The hydrogen which it is also called oxo acid or oxy acid, and can be dissociated as a proton is the acid combined with the oxygen atom, and an oxygen acid is a general formula  $E(OH)_m$  (it is here and E is Lynn, sulfur, or nitrogen), and, in a suitable case, those condensates are also contained. More specifically, a phosphoric acid (in this specification, a phosphoric acid points out orthophosphoric acid), a pyrophosphoric acid, a metaphosphoric acid, polyphosphoric acid, and hypophosphoric acid are contained in the oxygen acid of Lynn. A sulfuric acid is contained in a sulphuric oxygen acid. Moreover, a nitric acid and a nitrous acid are contained in the oxygen acid of nitrogen. As oxygen acids other than these things, there are phosphorous acid, hypophosphorous acid, a hyponitrous acid, etc. Moreover, the partial ester of an oxygen acid is the compound by which the hydroxyl which are not all the oxygen acids was esterified, for example, is  $PO(OR)(OH)_2$  in the partial ester of a phosphoric acid. And  $PO_2(OR)(OH)$  is contained. A hydrogen salt is also called acid salt, it is a compound containing the hydrogen ion which can be replaced by the electric positivity component of the salt of an oxygen acid by the cation, and is underwater, and double salt, such as hydroxylation phosphate, is also further contained about the compound which has the salt concerned in a hydrogen salt and equilibrium including the salt.

[0024] A reaction control agent composite-izes with the above-mentioned decomposition accelerator by hydrogen bond etc., under the usual preservation conditions of cellulose-acetate mold goods, it suppresses the disintegration to the cellulose acetate of the decomposition accelerator concerned, dissociates the compound operation by contact in water, separates a decomposition accelerator, demonstrates the disintegration, and is chosen by this invention from the groups which consist of a nitrogen content compound, a hydroxy compound, an oxygenated heterocyclic compound, and a sulfur-containing heterocyclic compound. Two or more sorts of mixture of these compounds is also used.

[0025] A nitrogen content compound is a compound which contains nitrogen in the structure, for example, can illustrate ammonia, amines, amine oxides, amides, urethane, an imido class, a nitro compound, a nitroso compound, and a nitrogen-containing heterocyclic compound (compound which contains nitrogen as a heterocycle member). A hydroxy compound is a compound which has a hydroxyl (-OH), for example, can illustrate alcohols (polyhydric alcohol is included), polyvinyl alcohol, polyglycerin, a saccharide, etc. An oxygenated heterocyclic compound is a compound which contains oxygen as a heterocycle member, and a sulfur-containing heterocyclic compound is a compound which contains sulfur as a heterocycle member.

[0026] In this invention, the above-mentioned decomposition accelerator and the reaction control agent are contained in the cellulose acetate in the state where it was made to composite-ize according to chemical interactions (for example, hydrogen bond etc.).

[0027] By the way, as for such complex, it is desirable that it is what follows and is supplied at a price extensive and safely acceptable [ a decomposition accelerator and a reaction control agent ]. Furthermore, although it is manufactured by the spinning method make a cellulose-acetate solution (spinning undiluted solution) breathe out from a spinning nozzle when fabricating a cellulose acetate fibrous generally, in order to manufacture the filter for tobacco etc. If these manufacturing processes are taken into consideration, the decomposition accelerator and reaction control agent which are used for this invention Even if it is meltable to the solvents (for example, an acetone, a methylene chloride / methanol mixed solvent, dimethyl sulfoxide, etc.) for dissolving a cellulose acetate or is a case insoluble to a solvent What is the compound which can be impalpable-powder-ized by the grade which does not have influence in the physical properties of fiber is desirable on a spinning process.

[0028] As for the decomposition accelerator used in this invention from the viewpoint of the ease of such safety and manufacture, and the point of the facilitatory effect of the biodegradability to a cellulose acetate, it is desirable that they are a phosphoric acid, polyphosphoric acid and those partial ester, or a hydrogen salt. As such partial ester or a hydrogen salt, the polymer or the copolymer of a phytic acid, phosphoric-acid starch, a phosphoric-acid cellulose, calcium hydrogenphosphate, lecithin, \*\*\*\*\* 2-ethylhexyl ester, HEMA (methacrylic-acid 2-hydroxyethyl) phosphoric ester, HEMA phenyl phosphoric ester, HEMA alkyl phosphoric ester and also HEMA phosphoric ester, HEMA phenyl phosphoric ester, and HEMA alkyl phosphoric ester can be illustrated preferably, for example.

[0029] Moreover, the reaction control agent used for this invention from the viewpoint of the ease of the above-mentioned safety and manufacture, and the point of the depressor effect of an acetic-acid smell the compound (for example, 2-pyrrolidone and a N-methyl-2-pyrrolidone --) which has pyrrolidone structure The compound which has a polyvinyl pyrrolidone and oxazolidone structure for example, 2-oxazolidone and 3-methyl-2-oxazolidone -- The compound which has polyvinyl oxazolidone and imido structure For example, (a phthalimide, a succinimid, a riboflavin, a polyvinyl phthalimide), the compound (for example, a pyridine, a nicotinic acid, and a nicotinamide --) which has pyridine structure The compound which has a polyvinyl pyridine and amine-oxide structure for example, an N-methyl morpholine N-oxide and an N-methyl piperidine N-oxide -- The compound which has a triethylamine N-oxide and pyrazine structure For example, (a pyrazine and a methyl pyrazine), polyvinyl alcohol, or its derivative For example, (a polyvinyl acetal and a polyvinyl butyral), an alkyl cellulose For example, (a methyl cellulose and an ethyl cellulose), a hydroxyalkyl cellulose For example, (a hydroxyethyl cellulose, a hydroxy butyl cellulose), Sucrose fatty acid ester, propylene glycol fatty acid ester, a sorbitan fatty acid ester, A glycerine fatty acid ester, polyoxyethylene glycerine fatty acid ester, Polyoxyethylene sorbitan fatty acid ester, polyoxyethylene sorbitol fatty acid ester, polyoxyethylene fatty acid amide, or fatty acid alkanolamide to a bird clapper is desirable. Two or more sorts of such mixture can also be used.

[0030] In this invention, the addition of a decomposition accelerator and a reaction control agent can design the biodegradation speed of a cellulose acetate, and the acetic-acid smell suppression level of a forming product.

[0031] More specifically, the addition of a decomposition accelerator can be arbitrarily set up with the biodegradation speed made into the purpose. For example, what is necessary is just to add a lot of decomposition accelerators, when you are going to make it biodegrade quickly. However, when the moldability of the cellulose-acetate constituent obtained is taken into consideration, as for a decomposition accelerator, it is desirable to add at 0.01 - 40% of the weight of a rate to a cellulose acetate, and it is still more desirable to add at 0.01 - 15% of the weight of a rate.

[0032] Moreover, the addition of a reaction control agent can be set up according to the suppression level of the acetic-acid smell made into the purpose. For example, what is necessary is just to add so a lot of reaction control agents, in suppressing the acetic-acid smell of mold goods further. However, if there are too many additions of an reaction inhibitor, the moldability of a cellulose-acetate constituent will fall. On the other hand, if there are too few amounts of a reaction control agent, depressor effect of an acetic-acid smell is not expectable. As for the addition of the above viewpoint to a reaction control agent, it is desirable that it is 0.01 - 50 % of the weight to a cellulose acetate, and it is still more desirable that it is 0.01 - 25 % of the weight to a cellulose acetate. moreover, the time of suppressing completely acetic-acid smell generating of cellulose-acetate mold goods -- a reaction control agent -- the addition of a decomposition accelerator -- receiving -- the chemical equivalent -- or it is desirable that it is more than it

[0033] The cellulose-acetate constituent of this invention can be fabricated in various structures by the usual method except

making the complex of this invention contain. For example, after carrying out melting mixture of a reaction control agent and the decomposition accelerator, the method of fabricating by the usual technique etc. is mentioned to the cellulose acetate which blended the method of fabricating by the usual technique after adding a reaction control agent and a decomposition accelerator in solutions, such as an acetone of a cellulose acetate, and a methylene chloride, the plasticizer, etc. and in which thermoforming is possible.

[0034] Moreover, the cellulose acetate fiber used for the filter for tobacco can be manufactured as follows, for example.

[0035] First, the solution (spinning undiluted solution) containing the complex of a cellulose acetate and this invention is prepared. As a solvent, mixed solvents, such as independent solvents, such as a methylene chloride and an acetone, or a methylene chloride, and a methanol, can be used. Generally, the concentration of a cellulose acetate is 15 - 35 % of the weight, and is 18 - 30 % of the weight preferably. In this spinning undiluted solution, a decomposition accelerator and a reaction control agent are contained at a rate of the above-mentioned range. This spinning undiluted solution can be prepared mixing the solution which made the solvent for cellulose acetates dissolve or distribute a decomposition accelerator and a reaction control agent, and the solution made to dissolve a cellulose acetate in the solvent for cellulose acetates, or by adding a decomposition accelerator and a reaction control agent directly in the solution of a cellulose acetate. In order that the sequence of addition of a decomposition accelerator and a reaction control agent may pull out the effect of a reaction control agent efficiently in the case of the latter, it is desirable to add a reaction control agent first and to add a decomposition accelerator.

[0036] Thus, the cellulose-acetate spinning undiluted solution containing the complex of the obtained this invention is supplied to spinning nozzle equipment, spinning is carried out by the spinning [ dry ] method which carries out the regurgitation into elevated-temperature atmosphere, and a cellulose acetate fiber is obtained. Moreover, you may perform not dry spinning but wet spinning. Although spinning of the spinning undiluted solution by which uniform distribution was carried out may furthermore be carried out fibrous as it is as mentioned above on the occasion of spinning, the method of carrying out compound spinning to a fiber side by side type or a \*\*\*\* type can also be used so that the cellulose acetate which contains complex at least may appear in a fiber front face using the cellulose-acetate spinning undiluted solution containing complex, and the cellulose-acetate spinning undiluted solution with which these compounds are not added. Furthermore on the occasion of manufacture of a spinning undiluted solution, other additives can also be used together in the range which does not spoil the property. For example, the resolvability of a cellulose-acetate constituent can be conjointly raised further with biodegradability promotion of this invention by making photolysis accelerators, such as titanium oxide, contain. Moreover, for example, in order to raise the homogeneity of a spinning undiluted solution, you may use together a dispersant, an emulsifier, a solubilizing agent, a viscosity modifier, etc. for viscosity regulation. Each cellulose acetate fiber which constitutes the filter plug for tobacco of this invention contains the complex of this invention to the surface field at least so that this publication may also show. In addition, a cellulose acetate fiber may be in the form of a fibril. Although it states below in being in the form of a fibril, it is desirable to use together with the cellulose acetate of this invention in the form of other materials [ like ] or usual fiber.

[0037] Thus, the obtained cellulose acetate fiber is manufactured as a filter for tobacco by the method of common use. There is especially no limit in the manufacture method row in filter structure, for example, it can manufacture as follows.

[0038] That is, the above-mentioned cellulose acetate fiber is made into the form of a tow, after opening this with a tobacco filter plug hoisting winch and installing a plasticizer (for example, thoria cetyl glycerol), it fabricates in a fiber rod configuration, it cuts to required length, and a filter plug is formed. In addition, in order to make production of a filter plug easy, the total fineness as a fiber bundle is set up suitably. Or a cellulose acetate fiber can also be fabricated with the usual plug hoisting winch in the shape of a rod using the nonwoven fabric sheet produced from the staple fiber which it comes to cut into 1-100mm. The cellulose acetate fiber of this invention may be used independently, and may manufacture a filter, or can manufacture a filter also by using other components together to this by making the cellulose acetate fiber of this invention into one component. As such other components, nature or semisynthesis material for example, pulp, a linter, cotton, hemp, a viscose rayon, and cuprammonium rayon -- The biodegradable polymer of microorganism production systems, such as polyhydroxy or alkanoate, such as RIYOSERU and wool the usual synthetic material (for example, polyester, such as polyolefines, such as polypropylene, and a polyethylene terephthalate, --) A polyamide, biodegradability composition material (for example, a polylactic acid, the poly caprolactone, polybutylene succinate, polyvinyl alcohol), photolysis nature material, etc. can be used with the form of fiber or a nonwoven fabric. In this case, it is desirable to use a material excellent in especially biodegradability. Moreover, although it is not fiber, the foam of starch can also be used as a material excellent in biodegradability.

[0039] Moreover, water-soluble adhesives can also be used instead of a plasticizer in the above-mentioned manufacture method. In the case where a plasticizer is used, the filter for tobacco which had combined cellulose acetate fibers firmly by melting adhesion, consequently was abandoned in natural environment holds the rod configuration stably for a long period of time. On the other hand, when water-soluble adhesives are used, when the pasting up point of cellulose acetate fibers is abandoned in natural environment, it is easily dissociated with a lot of water (rain, seawater, \*\*\*\*, lake, etc.). Consequently, the filter for tobacco can collapse a rod configuration easily. The cellulose acetate fiber to which the rod configuration collapsed has a breadth, for example in surface of the earth in natural environment, it is developed, a touch area with the microorganism environment of the material which influences biodegradation speed becomes large, and the resolvability of the filter for tobacco is further promoted as a result. Therefore, the resolvability of the filter for tobacco can be conjointly raised further with biodegradability promotion of the cellulose acetate of this invention.

[0040] Moreover, although the configurations of a cellulose acetate fiber may be any of a staple and a filament, it is desirable to consider as the configuration called fiber tow as a cellulose acetate fiber which constitutes the filter for tobacco of this invention, and they can be made arbitrary [ the total fineness of a tow ]. For example, the fiber tow of the shape of a band which was made

to converge 3,000-500,000 0.5 to 15-denier fiber, and gave 10-50 crimps per 25mm length is desirable. Furthermore, especially the cross-section configuration of each fiber has the desirable cross-section configuration of the viewpoint of the filtration efficiency as a filter for tobacco to many foliaceous, although a round shape, a square, etc. are not limited, and a Y character-like cross-section configuration is preferably used from the point of manufacturing process stability also in it.

[0041] The cellulose-acetate constituent and the filter for tobacco containing this additive have the following features. Namely, in the inside of the manufacturing process of cellulose-acetate mold goods, and the stage of a forming product, a decomposition accelerator is stabilized by chemical interactions (for example, hydrogen bond etc.) with a reaction control agent, consequently does not produce the chemical adding-water decomposition reaction of a cellulose acetate. Therefore, the forming product concerned presents the property of the usual cellulose-acetate mold goods which do not contain the complex of this invention. However, if the forming product of this invention is abandoned in natural environment, the complex of the decomposition accelerator contained in this and a reaction control agent dissociates the interaction with a lot of water (rain, seawater, \*\*\*\*, lake, etc.), and a decomposition accelerator will be in the state of isolation. Then, a decomposition accelerator discovers the function (decomposition promotion function) for the first time. That is, it becomes possible by using a reaction control agent together with a decomposition accelerator to control the reactivity of the decomposition accelerator which brings about promotion of the biodegradability of a cellulose acetate in a forming product and natural environment. Thus, in the stage where the forming product of this invention is used for usual as a product, since the chemical adding-water decomposition reaction of a cellulose acetate does not advance, it is maintaining the property (DS) of the cellulose acetate of a start raw material, and does not produce the odor by the acetic acid, either. And in natural environment, cellulose-acetate mold goods are notably biodegraded by operation of the decomposition accelerator dissociated from the reaction control agent by contact in water.

[0042]

[Example] Hereafter, an example explains this invention.

[0043] Example 1 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To this solution, it is a polyvinyl pyrrolidone (average molecular weight (weight average molecular weight.)). Hereafter, to the cellulose acetate, at 25% of the weight of a rate, it added, and the 25,000 [ same ] was stirred and was made uniform. Subsequently, the phosphoric acid was added at 5% of the weight of a rate to the cellulose acetate, and it stirred until it became uniform again. In this way, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained. It checked that it was not what is dissolving and distributing uniformly the decomposition accelerator and reaction control agent which constitute complex in a film, and affects the moldability of a cellulose acetate film from the obtained film.

[0044] Example 2 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To the cellulose acetate, at 25% of the weight of a rate, it added, and 2-pyrrolidone was stirred in this solution and made uniform at it. Subsequently, the phosphoric acid was added at 5% of the weight of a rate to the cellulose acetate, and it stirred until it became uniform again. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained. It checked that it was not what is dissolving and distributing uniformly the decomposition accelerator and reaction control agent which constitute complex in a film, and affects the moldability of a cellulose acetate film from the obtained film.

[0045] Example 3 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To the cellulose acetate, at 25% of the weight of a rate, it added, and the N-methyl morpholine N-oxide was stirred in this solution, and was made uniform at it. Subsequently, the phosphoric acid was added at 5% of the weight of a rate to the cellulose acetate, and it stirred until it became uniform again. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained. It checked that it was not what is dissolving and distributing uniformly the decomposition accelerator and reaction control agent which constitute complex in a film, and affects the moldability of a cellulose acetate film from the obtained film.

[0046] Example 4 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To the cellulose acetate, at 25% of the weight of a rate, it added, and in this solution, the polyvinyl butyral (average molecular weight 2,000) was stirred, and was made uniform at it. Subsequently, the phosphoric acid was added at 5% of the weight of a rate to the cellulose acetate, and it stirred until it became uniform again. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained. It checked that it was not what is dissolving and distributing uniformly the decomposition accelerator and reaction control agent which constitute complex in a film, and affects the moldability of a cellulose acetate film from the obtained film.

[0047] Example 5 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To the cellulose acetate, at 25% of the weight of a rate, it added, and in this solution, the polyvinyl pyrrolidone (average molecular weight 25,000) was stirred, and was made uniform at it. Subsequently, polyphosphoric acid was added at 5% of the weight of a rate to the cellulose acetate, and it stirred until it became uniform again. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained. It checked that it was not what is dissolving and distributing uniformly the decomposition accelerator and reaction control agent which constitute complex in a film, and affects the moldability of a cellulose acetate film from the obtained film.

[0048] Example 6 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of

concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To the cellulose acetate, at 25% of the weight of a rate, it added, and 2-pyrrolidone was stirred in this solution and made uniform at it. Subsequently, polyphosphoric acid was added at 5% of the weight of a rate to the cellulose acetate, and it stirred until it became uniform again. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained. It checked that it was not what is dissolving and distributing uniformly the decomposition accelerator and reaction control agent which constitute complex in a film, and affects the moldability of a cellulose acetate film from the obtained film.

[0049] Example 7 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To the cellulose acetate, at 25% of the weight of a rate, it added, and the N-methyl morpholine N-oxide was stirred in this solution, and was made uniform at it. Subsequently, polyphosphoric acid was added at 5% of the weight of a rate to the cellulose acetate, and it stirred until it became uniform again. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained. It checked that it was not what is dissolving and distributing uniformly the decomposition accelerator and reaction control agent which constitute complex in a film, and affects the moldability of a cellulose acetate film from the obtained film.

[0050] Example 8 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. It added so that it might become 25% of the weight in this solution to a cellulose acetate about a polyvinyl butyral (average molecular weight 2,000), and it stirred, and was made uniform. Subsequently, polyphosphoric acid was added at 5% of the weight of a rate to the cellulose acetate, and it stirred until it became uniform again. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained. It checked that it was not what is dissolving and distributing uniformly the decomposition accelerator and reaction control agent which constitute complex in a film, and affects the moldability of a cellulose acetate film from the obtained film.

[0051] Example of comparison 1 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To the cellulose acetate, at 5% of the weight of a rate, it added, and the phosphoric acid was stirred in this solution and made uniform at it. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained.

[0052] Example of comparison 2 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. To the cellulose acetate, at 5% of the weight of a rate, it added, and polyphosphoric acid was stirred in this solution and made uniform at it. Thus, the obtained cellulose-acetate solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained.

[0053] Example of comparison 3 cellulose-acetate flakes (DS=2.5) were dissolved in the acetone so that it might become 28 % of the weight of concentration, and the cellulose-acetate solution was obtained. This solution was cast on the glass plate, it dried and the cellulose acetate film with a thickness of about 100 micrometers was obtained.

[0054] The acetic-acid odor level of these films was evaluated using the cellulose acetate film obtained in the <evaluation of measurement [ of acetic-acid concentration ], and acetic-acid odor level> example 1 - the example 8 and the example 1 of comparison - the example 3 of comparison. Acetic-acid odor level pierced the circular piece (diameter of 5cm) immediately from each film immediately after manufacture, put this in the odor bag, left it in the 50-degree C thermostatic chamber, and measured the acetic-acid concentration in the odor bag of one week after by the gas-detector method. Moreover, the organoleptics method estimated the acetic-acid odor level of a film simultaneously. A result is shown in Table 1.

[0055]

[Table 1]



表 1 各種セルロースアセテートフィルムの  
酢酸臭気評価結果

試料	酢酸濃度(ppm)	酢酸臭気レベル*
実施例1	0.8	0
実施例2	12.0	1～2
実施例3	0.2	0
実施例4	31.0	2
実施例5	0.8	0
実施例6	12.0	1～2
実施例7	0.1	0
実施例8	30.0	2
比較例1	40.0	3
比較例2	44.0	3
比較例3	0.8	0

\*酢酸臭気レベル

- 0: 臭気を感じない
- 1: 若干臭気を感じる
- 2: 臭気を感じる
- 3: 強く臭気を感じる

[0056] From the above result, by using a reaction control agent together shows that the generating level of the acetic-acid smell resulting from having added the decomposition accelerator can be suppressed. That is, in the inside of the manufacturing process of cellulose-acetate mold goods (film), and the stage of the product, it turns out that a decomposition accelerator is stabilized by the reaction control agent and the operation of a decomposition accelerator is suppressed. Moreover, as for by choosing the kind of reaction inhibitor, the grade of suppression of decomposition promotion also shows that it can set up arbitrarily.

[0057] Five sorts of cellulose acetate films were fabricated like the example 1 except having used the addition of example 9 polyvinyl pyrrolidone (average molecular weight 25,000) to the cellulose acetate at 5 % of the weight, 10 % of the weight, 15 % of the weight, 20 % of the weight, and 30% of the weight of a rate.

[0058] The relation between the acetic-acid odor level of a cellulose acetate film and the addition of a polyvinyl pyrrolidone was investigated using the cellulose acetate film of the various additions obtained by this example in the example 1 and the example of comparison 1 row. The result is shown in Table 2. In addition, the evaluation examination was performed according to the method in measurement of the above-mentioned acetic-acid concentration, and evaluation of acetic-acid odor level.

[0059]

[Table 2]

表 2 セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルと  
ポリビニルピロリドンの添加量との関係

ポリビニルピロリドン 添加量(重量%)	酢酸濃度 (ppm)	酢酸臭気レベル
0	40.0	3
5	5.0	1
10	1.7	0～1
15	1.1	0
20	0.8	0
25	0.8	0
30	0.8	0

[0060] From the above result, by choosing the addition of a reaction control agent shows that the generating level of the acetic-acid smell resulting from addition of a decomposition accelerator can be set up arbitrarily.

[0061] The cellulose acetate film was fabricated like the example 3 except having used the addition of a 10N-methyl morpholine [ of examples ] N-oxide to the cellulose acetate at 1 % of the weight, 5 % of the weight, 10 % of the weight, 15 % of the weight, 20 % of the weight, and 30% of the weight of a rate.

[0062] The relation between the acetic-acid odor level of a cellulose acetate film and the addition of an N-methyl morpholine N-oxide was investigated using the cellulose acetate film of the various additions obtained by this example in the example 3 and the example of comparison 1 row. The result is shown in Table 3. In addition, the evaluation examination was performed according to the method in measurement of the above-mentioned acetic-acid concentration, and evaluation of acetic-acid odor level.

[0063]



[Table 3]

表 3 セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルと  
N-メチルモルホリンN-オキシドの添加量との関係

N-メチルモルホリンN-オキシド 添加量(重量%)	酢酸濃度 (ppm)	酢酸臭気レベル
0	40.0	3
1	3.2	1
5	0.4	0
10	0.3	0
15	0.3	0
20	0.2	0
25	0.2	0
30	0.1	0

[0064] From the above result, by choosing the addition of a reaction control agent shows that the generating level of the acetic-acid smell resulting from decomposition accelerator addition can be set up arbitrarily.

[0065] The cellulose acetate film was obtained like the example 1 except having made the addition of example 11 polyvinyl pyrrolidone (average molecular weight 25,000) into 10 % of the weight to the cellulose acetate, and having made the addition of a phosphoric acid into 1 % of the weight to the cellulose acetate.

[0066] The relation between the acetic-acid odor level of a cellulose acetate film and the addition of a phosphoric acid was investigated using the obtained cellulose acetate film. The result is shown in Table 4. In addition, the evaluation examination was performed according to the method in measurement of the above-mentioned acetic-acid concentration, and evaluation of acetic-acid odor level.

[0067]

[Table 4]

表 4 セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとリン酸の添加量  
との関係(反応制御剤:ポリビニルピロリドン(添加量10重量%))

リン酸添加量(重量%)	酢酸濃度(ppm)	酢酸臭気レベル
1	0.9	0
5	1.7	0~1

[0068] From the above result, by choosing the addition of a decomposition accelerator shows that the generating level of an acetic-acid smell can be set up arbitrarily.

[0069] The cellulose acetate film was obtained like the example 3 except having made the addition of a 12N-methyl morpholine [ of examples ] N-oxide into 1 % of the weight to the cellulose acetate, and having made the addition of a phosphoric acid into 1 % of the weight to the cellulose acetate.

[0070] The relation between the acetic-acid odor level of a cellulose acetate film and the addition of a phosphoric acid was investigated using the obtained cellulose acetate film. The result is shown in Table 5. In addition, the evaluation examination was performed according to the method in measurement of the above-mentioned acetic-acid concentration, and evaluation of acetic-acid odor level.

[0071]

[Table 5]

表 5 セルロースアセテートフィルムの酢酸臭気レベルとリン酸の添加量と  
の関係(反応制御剤:N-メチルモルホリンN-オキシド(添加量1重量%))

リン酸添加量(重量%)	酢酸濃度(ppm)	酢酸臭気レベル
1	0.3	0
5	3.2	1

[0072] From the above result, by choosing the addition of a decomposition accelerator shows that the generating level of an acetic-acid smell can be set up arbitrarily.

[0073] The acidity of the film shown when these films contact a lot of water was evaluated using the cellulose acetate film obtained in example 13 example 1, an example 3, the example 5, the example 7 and the example 1 of comparison - the example 3 of comparison. That is, the circular piece (diameter of 5cm) was pierced from the manufactured film, this was left for one day in the room temperature in the state where it was immersed in underwater [ of 100mL(s) ], and pH of the immersing water at that time was measured by the usual pH meter. A result is shown in Table 6.

[0074]

[Table 6]

表 6 セルロースアセテートフィルムの水に接触した際の  
酸性度評価結果

試 料	浸漬水のpH値
実施例1	2.3
実施例3	4.4
実施例5	2.5
実施例7	4.5
比較例1	2.3
比較例2	2.5
比較例3	6.3

[0075] The above result shows that a decomposition accelerator cannot be influenced of the reaction control agent used together, but can discover the function by contact in a lot of water also in which example. That is, with a lot of water, the complex of the decomposition accelerator contained in the cellulose-acetate constituent by this invention and a reaction control agent dissociates the interaction, and understands the state and bird clapper of isolation of a decomposition accelerator.

[0076] The biodegradability of these films was evaluated using the cellulose acetate film obtained in example 14 example 1, an example 2, an example 3, the example 5, the example 6 and the example 1 of comparison - the example 3 of comparison. That is, the circular piece (diameter of 5cm) was pierced from each manufactured film, this was laid underground into soil, and the weight percentage reduction of the film of 60 days after was measured. The weight percentage reduction was computed from the film weight before and behind soil laying under the ground (dry weight). A result is shown in Table 7.

[0077]

[Table 7]

表 7 セルロースアセテートフィルムの生分解性評価結果

試 料	重量減少率(%)	フィルムの外観観察
実施例1	41.6	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
実施例2	37.1	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
実施例3	30.1	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
実施例5	27.9	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
実施例6	29.3	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
比較例1	17.5	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
比較例2	21.0	脆く、小片化。虫蝕痕目立つ。
比較例3	3.0	顕著な変化なし。

[0078] The above result shows that promotion of the biodegradation speed of a cellulose-acetate constituent is attained also in which example. That is, it turns out that combined use of the reaction control agent which suppresses an acetic-acid smell is not what has the influence of negative on the facilitatory effect of the biodegradation speed of a cellulose acetate with a decomposition accelerator.

[0079]

[Effect of the Invention] The cellulose-acetate mold goods which were described above and which according to [ like ] this invention could suppress DS value change of a cellulose acetate with time and generating of an acetic-acid smell, and were moreover excellent in biodegradability are offered.

---

[Translation done.]